

BEST AVAILABLE COPY

DialogWeb

[Command Search](#) [New Search](#) [Databases](#) [Alerts](#) [Order](#) [Cross](#) [Logout](#) [Help](#)

- For more records, click the Records link at page end.
- To change the format of selected records, select format and click Display Selected.
- To print/save clean copies of selected records from browser click Print/Save Selected.
- To have records sent as hardcopy or via email, click Send Results.

 [Select All](#) [Clear Selections](#)[Print/Save Selected](#)[Send Results](#)

Format

[Display Selected](#)

Free

1. 1/9/10010963950 *Drawing available*

WPI Acc no: 2001-587434/

XRAM Acc no: C2001-174222

Silicate fluorescent substance for lamp

Patent Assignee: KOREA ADV INST SCI & TECHNOLOGY (KOAD); KOREA INST CONSTR TECHNOLOGY (KOCS-N)

Inventor: BYUN J H; KIM C H; PARK C H

Patent Family (2 patents, 1 countries)

Patent Number	Kind	Date	Application Number	Kind	Date	Update	Type
KR 2001026297	A	20010406	KR 199937549	A	19990904	200166	B
KR 306996	B	20010924	KR 199937549	A	19990904	200233	E

Priority Applications (no., kind, date): KR 199937549 A 19990904

Patent-Details

Patent Number	Kind	Lan	Pgs	Draw	Filing Notes
KR 2001026297	A	KO	1	10	
KR 306996	B	KO			Previously issued patent KR 2001026297

Alerting Abstract KR A

NOVELTY – A novel fluorescent substance which has an improved luminous efficiency regarding ultraviolet rays near 370 nanometer by modifying a conventional luminous substance of $(Ba_{2-x}Sr_x)SiO_4:Eu^+$ is provided.

DESCRIPTION – The fluorescent substance, which uses europium as an activator, is represented by the following formula (1), $(Ba_{2-x-y-z-\alpha} Sr_x Eu_y M_z)_\alpha$. In the formula 1, x is $0 \leq x \leq 2$, y is $0.001 \leq y \leq 0.05$, z is $0.001 \leq z \leq 0.1$, α is $0 \leq \alpha \leq 0.1$, $x+y+z+\alpha$ is $0 \leq x+y+z+\alpha \leq 2$, delta is $-0.05 \leq \delta \leq 0.05$, M is La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga and In and L is Li, Na and K.

Title Terms /Index Terms/Additional Words: SILICATE; FLUORESCENT ;
SUBSTANCE; LAMP

Class Codes

International Patent Classification

IPC

Class Level Scope Position Status Version Date

Command

[Submit](#) [Delete](#)

2/3/1

0010963950 Drawing available

WPI Acc no: 2001-587434/

XRAM Acc no: C2001-174222

Silicate fluorescent substance for lamp

Patent Assignee: KOREA ADV INST SCI & TECHNOLOGY (KOAD); KOREA INST CONSTR TECHNOLOGY (KOCS-N)

Inventor: BYUN J H; KIM C H; PARK C H

Patent Family (2 patents, 1 countries)

Patent Number	Kind	Date	Application Number	Kind	Date	Update	Type
KR 2001026297	A	20010406	KR 199937549	A	19990904	200166	B
KR 306996	B	20010924	KR 199937549	A	19990904	200233	E

Priority Applications (no., kind, date): KR 199937549 A 19990904

Patent Details

Patent Number	Kind	Lan	Pgs	Draw	Filing Notes
KR 2001026297	A	KO	1	10	
KR 306996	B	KO			Previously issued patent KR 2001026297

Derwent WPI (Dialog® File 352); (c) 2006 The Thomson Corporation. All rights reserved.

© 2006 Dialog, a Thomson business

(19) 대한민국특허청 (KR)
 (12) 등록특허공보 (B1)

(51) Int. Cl. 6
 C09K 11/08

(45) 공고일자 2001년09월24일
 (11) 등록번호 10-0306996
 (24) 등록일자 2001년08월16일

(21) 출원번호 10-1999-0037549
 (22) 출원일자 1999년09월04일

(65) 공개번호 특2001-0026297
 (43) 공개일자 2001년04월06일

(73) 특허권자 한국과학기술연구원
 박호균
 서울 성북구 하월곡2동 39-1

(72) 발명자 김창홍
 서울특별시동작구상도4동212-103
 변종홍
 서울특별시송파구잠실6동장미아파트19-1207
 박철희
 서울특별시성북구석관2동340-294

(74) 대리인 주성민
 장수길

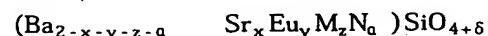
심사관 : 최성근

(54) 신규 램프용 규산염계 형광체

요약

본 발명은 유로퓸을 활성제로 하는 하기 화학식 1의 형광체 및 그의 제조 방법에 관한 것이다.

화학식 1



상기 식 중, x 는 $0 \leq x < 2$ 이고, y 는 $0.001 \leq y \leq 0.05$ 이고, z 는 $0.001 \leq z \leq 0.1$ 이고, a 는 $0 \leq a \leq 0.1$ 이고, $x+y+z+a$ 는 $0 \leq x+y+z+a \leq 2$ 이고, δ 는 $-0.05 \leq \delta \leq 0.05$ 이고, M 은 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga, In이며, N 은 Li, Na, K이다.

본 발명에 따라, 기존의 $(Ba_{2-x} Sr_x) SiO_4 : Eu^{2+}$ 형광체의 알칼리 토금속의 일부를 회토류 원소, 3족 원소, 알칼리 금속 이온 등으로 치환하여 형광체를 제조함으로써, 수은등에서 나오는 365 nm의 자외선과 자외선 발광 다이오드에서 나오는 370 nm 근처의 자외선에 대해 기존의 $(Ba_{2-x} Sr_x) SiO_4 : Eu^{2+}$ 형광체보다 80 % 이상 높아진 발광 효율을 얻을 수 있다.

따라서, 본 발명의 형광체는 수은등용 형광체로서의 특성으로서 바람직할 뿐 아니라 무수은등으로 사용하려는 백색 발광 다이오드를 제조하는데 사용되는 형광체로서도 바람직하다.

대표도 도 1

색인어
형광체, 램프, 발광 다이오드, 알칼리 토금속, 희토류

명세서

도면의 간단한 설명

도 1은 본 발명의 실시예 1과 실시예 2에서 얻은 형광체와 종래의 $\text{Ba}_{0.99} \text{Sr}_{0.99} \text{Eu}_{0.02} \text{SiO}_4$ 형광체를 365 nm의 자외선으로 여기시켜 얻은 발광 분광분포도 (emission spectrum).

도 2는 본 발명의 실시예 1과 실시예 2에서 얻은 형광체와 종래의 $\text{Ba}_{0.99} \text{Sr}_{0.99} \text{Eu}_{0.02} \text{SiO}_4$ 형광체의 515 nm 발광에 대한 여기 분광분포도 (excitation spectrum).

도 3은 본 발명의 실시예 3과 실시예 4에서 얻은 형광체와 종래의 $\text{Ba}_{0.99} \text{Sr}_{0.99} \text{Eu}_{0.02} \text{SiO}_4$ 형광체의 515 nm 발광에 대한 여기 분광분포도.

도 4는 본 발명의 실시예 5에서 얻은 형광체와 종래의 $\text{Ba}_{0.99} \text{Sr}_{0.99} \text{Eu}_{0.02} \text{SiO}_4$ 형광체의 515 nm 발광에 대한 여기 분광분포도.

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 수은등용으로서 뿐만 아니라 무수은등으로 사용하려는 백색 발광 다이오드를 제조하는데에도 바람직한 형광체 및 그의 제조 방법에 관한 것이다.

보다 구체적으로, 본 발명은 유로퓸을 활성제로 하는 하기 화학식 1의 형광체에 관한 것이다.

< 화학식 1



상기 식 중,

x 는 $0 \leq x < 2$ 이고, y 는 $0.001 \leq y \leq 0.05$ 이고, z 는 $0.001 \leq z \leq 0.1$ 이고, a 는 $0 \leq a \leq 0.1$ 이고, $x+y+z+a$ 는 $0 \leq x+y+z+a \leq 2$ 이고, δ 는 $-0.05 \leq \delta \leq 0.05$ 이고, M은 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga, In이며, N은 Li, Na, K이다.

또한, 본 발명은 출발물질을 상기 화학식 1의 조성에 따라 정량적으로 청량하여 갈아준 후, 알루미나 도가니에 넣고 가열하는 제1 열처리 단계;

상기 제1 열처리가 끝난 시료를 전기로 안에서 자연 냉각시킨 후 다시 갈아주고 이를 보트에 담아 수소 기체나 수소와 질소 혼합 기체를 흘리는 판 전기로 안에서 가열하는 제2 열처리 단계;

상기 제2 열처리가 끝난 시료를 수소 기체나 수소와 질소 혼합 기체를 흘리는 관 전기로 안에서 자연 냉각시키는 단계를 포함하는, 상기 화학식 1의 형광체의 제조 방법에 관한 것이다.

종래 램프용 형광체로서 유로퓸을 물들인 규산염계 형광체 $(\text{Ba}_{2-x} \text{Sr}_x)\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ (Eu 의 농도는 0.0005에서 0.05까지만) 가 이미 알려져 있다 (J. Electrochem. Soc. 115(11), 1181(1968) 및 미국 특허 제3,505,240호(1970.4.7.)). 이 형광체는 수은등에서 여기 원으로 사용되는 253.7 nm와 365 nm의 자외선에 대해 높은 발광 효율을 가지는 것으로 보고되어 있다. 그리고 x 값을 조절하여 녹색에서 노란색까지 다양한 색을 구현할 수 있다.

최근에는 InGaN 계의 발광 다이오드 (LED)에서 나오는 370 nm 근처의 자외선을 여기 원으로 사용할 수 있는 형광체를 다이오드에 발라서 백색 광을 내려는 시도가 있으며, $(\text{Ba}_{2-x} \text{Sr}_x)\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 형광체는 이런 목적에도 사용할 수 있다 (Phosphor Research Society Meeting Digest, 264, 5 (1996); J. Crystal Growth 195, 242 (1998); 및 J. Crystal Growth 189/190, 778 (1998)).

발명이 이루고자 하는 기술적 과제

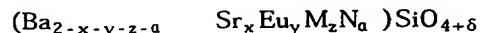
본 발명의 목적은 기존의 $(\text{Ba}_{2-x} \text{Sr}_x)\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 형광체를 변형하여 365 nm와 발광 다이오드에서 내는 자외선에 대해 발광 효율이 향상된 형광체를 얻는 것이다.

발명의 구성 및 작용

본 발명자들은 $(\text{Ba}_{2-x} \text{Sr}_x)\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 형광체의 알칼리 토금속의 일부를 화토류 원소인 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc 등과 3족 원소인 Al, Ga, In 등으로 치환해 주고 또 알칼리 금속 이온인 Li, Na, K 등으로 치환해 주었을 때 365 nm의 자외선에 대해서는 밝기를 80 % 이상까지 향상시킬 수 있음을 알게 되었다.

따라서, 본 발명은 유로퓸을 활성제로 하는 하기 화학식 1의 형광체에 관한 것이다.

< 화학식 1



상기 식 중,

x 는 $0 \leq x < 2$ 이고, y 는 $0.001 \leq y \leq 0.05$ 이고, z 는 $0.001 \leq z \leq 0.1$ 이고, a 는 $0 \leq a \leq 0.1$ 이고, $x+y+z+a$ 는 $0 \leq x+y+z+a \leq 2$ 이고, δ 는 $-0.05 \leq \delta \leq 0.05$ 이고, M은 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga, In이며, N은 Li, Na, K이다.

또한, 본 발명은 출발물질을 상기 화학식 1의 조성에 따라 정량적으로 청량하여 갈아준 후, 알루미나 도가니에 넣고 가열하는 제1 열처리 단계;

상기 제1 열처리가 끝난 시료를 전기로 안에서 자연 냉각시킨 후 다시 갈아주고 이를 보트에 담아 수소 기체나 수소와 질소 혼합 기체를 흘리는 관 전기로 안에서 자연 냉각시키는 단계;

상기 제2 열처리가 끝난 시료를 수소 기체나 수소와 질소 혼합 기체를 흘리는 관 전기로 안에서 자연 냉각시키는 단계를 포함하는, 상기 화학식 1의 형광체의 제조 방법에 관한 것이다.

본 발명의 화학식 1의 형광체를 제조하는데 사용되는 합성 원료인 Si 화합물은 순도가 99% 이상인 SiO_2 이고, Ba, Sr, Eu, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga, In 등은 순도 99.9 % 이상의 질산염, 탄산염 또는 산화물 형태, 구체적으로는 BaCO_3 , SrCO_3 , Eu_2O_3 , Al_2O_3 , Y_2O_3 , Gd_2O_3 등의 형태이며, Li, Na, K 등은 순도 99.9 % 이상의 탄산염 형태, 구체적으로는 Na_2CO_3 등의 형태이다.

출발물질은 일반적으로 마노 막자사발에서 30분 이상 갈아준다. 그리고, 제1 열처리가 끝난 시료는 마노 막자사발에서 다시 10분간 갈아준다.

제1 열처리는 700 °C ~ 1000 °C에서 2시간 ~ 4시간 동안 수행한다. 또한, 제2 열처리는 1000 °C ~ 1300 °C에서 2시간 ~ 10시간 동안 수행한다.

이하, 실시예를 들어서 본 발명의 실시형태를 보다 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이들의 실시예에 의해 한정되는 것은 아니다.

< 실시예 1

$Ba_{0.97} Sr_{0.97} Eu_{0.02} Al_{0.02} Na_{0.02} SiO_4$ ($x=0.97$, $y=0.02$, $z=0.02$, $\alpha =0.02$, $\delta =0$, M=Al, N=Na)의 제조

출발물질 $BaCO_3$ 3.8292 g, $SrCO_3$ 2.8642 g, Eu_2O_3 0.0704 g, Al_2O_3 0.0204 g, Na_2CO_3 0.0212 g, SiO_2 1.2065 g 을 마노 막자 사발에서 30분 정도 섞었다. 이 혼합물을 알루미나 도가니에 옮겨 2시간에 걸쳐서 950 °C 까지 온도를 올려주고 950 °C에서 2 시간 동안 반응시켰다.

상기 제1 열처리가 끝난 시료를 전기로 안에서 상온까지 자연 냉각시킨 후 마노 막자 사발에서 10 분간 갈아주었다. 이를 백금 보트에 담아 관 전기로에 넣고 3시간 동안 수소를 흘려 준 후 분당 10 cc의 수소를 흘리면서 2시간에 걸쳐 1200 °C 까지 온도를 올려주고 1200 °C에서 3시간 동안 가열하였다.

상기 제2 열처리가 끝난 시료를 수소를 흘리면서 전기로 안에서 자연 냉각시켜 형광체를 얻었다.

이 형광체의 밝기를 여러가지 여기 파장에서 같은 방법으로 만든 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 의 밝기와 비교한 결과, 365 nm에서 160 %, 400 nm에서 155 %, 450 nm에서 136 %의 밝기를 보였다.

본 실시예의 형광체 및 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 형광체의 발광 분광분포도는 같은 모양을 가지지만 여기 분광분포도는 조금 다른 모양을 가진다. 구체적으로, 도 1에는 365 nm의 자외선으로 여기시켜 얻은 두 형광체의 발광 분광분포도가 비교되어 있고, 도 2에 최대 발광 세기를 보이는 515 nm에 대한 두 형광체의 여기 분광분포도가 비교되어 있다.

< 실시예 2

$Ba_{0.97} Sr_{0.97} Eu_{0.02} Y_{0.02} Na_{0.02} SiO_4$ ($x=0.97$, $y=0.02$, $z=0.02$, $\alpha =0.02$, $\delta =0$, M=Y, N=Na)의 제조

출발물질로서 $BaCO_3$ 3.8292 g, $SrCO_3$ 2.8642 g, Eu_2O_3 0.0704 g, Y_2O_3 0.0452 g, Na_2CO_3 0.0212 g, SiO_2 1.2065 g을 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 표제의 형광체를 합성하였다.

이 형광체의 밝기를 같은 방법으로 만든 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 의 밝기와 비교한 결과, 365 nm에서 181 %, 400 nm에서 182 %, 450 nm에서 175 %의 밝기를 보였다.

본 실시예의 형광체 및 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 형광체의 발광 분광분포도는 같은 모양을 가지지만 여기 분광분포도는 조금 다른 모양을 가진다. 구체적으로, 도 1에는 365 nm의 자외선으로 여기시켜 얻은 두 형광체의 발광 분광분포도가 비교되어 있고, 도 2에는 최대 발광 세기를 보이는 515 nm에 대한 두 형광체의 여기 분광분포도가 비교되어 있다.

< 실시예 3

$Ba_{0.98} Sr_{0.98} Eu_{0.02} Gd_{0.02} SiO_{4.01}$ ($x=0.98$, $y=0.02$, $z=0.02$, $\alpha =0$, $\delta =0.01$, M=Gd)의 제조

출발물질로서 $BaCO_3$ 3.8686 g, $SrCO_3$ 2.8937 g, Eu_2O_3 0.0704 g, Gd_2O_3 0.0725 g, SiO_2 1.2065 g을 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 표제의 형광체를 합성하였다.

이 형광체의 밝기를 같은 방법으로 만든 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 의 밝기와 비교한 결과, 365 nm에서 126 %, 400 nm에서 136 %, 450 nm에서 162 %의 밝기를 보였다.

본 실시예의 형광체 및 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 형광체의 발광 분광분포도는 같은 모양을 가지지만 여기 분광분포도는 서로 다른 모양이다. 구체적으로, 도 3에는 최대 발광 세기를 보이는 515 nm에 대한 두 형광체의 여기 분광분포도가 비교되어 있다.

< 실시예 4

$Ba_{0.97} Sr_{0.97} Eu_{0.02} Gd_{0.02} Na_{0.02} SiO_4$ ($x=0.97$, $y=0.02$, $z=0.02$, $\alpha = 0.02$, $\delta = 0$, M=Gd, N=Na)의 제조

출발물질로서 $BaCO_3$ 3.8292 g, $SrCO_3$ 2.8642 g, Eu_2O_3 0.0704 g, Gd_2O_3 0.0725 g, Na_2CO_3 0.0212 g, SiO_2 1.2065 g을 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 표제의 형광체를 합성하였다.

이 형광체의 밝기를 같은 방법으로 만든 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 의 밝기와 비교한 결과, 365 nm에서 147 %, 400 nm에서 160 %, 450 nm에서 190 %의 밝기를 보였다.

본 실시예의 형광체 및 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 형광체의 발광 분광분포도는 같은 모양을 가지지만 여기 분광분포도는 서로 다른 모양이다. 구체적으로, 도 3에는 최대 발광 세기를 보이는 515 nm에 대한 두 형광체의 여기 분광분포도가 비교되어 있다.

< 실시예 5

$Ba_{0.91} Sr_{0.91} Eu_{0.02} Gd_{0.08} Na_{0.08} SiO_4$ ($x=0.91$, $y=0.02$, $z=0.08$, $\alpha = 0.08$, $\delta = 0$, M=Gd, N=Na)의 제조

출발물질로서 $BaCO_3$ 3.5923 g, $SrCO_3$ 2.6870 g, Eu_2O_3 0.0704 g, Gd_2O_3 0.2900 g, Na_2CO_3 0.0848 g, SiO_2 1.2065 g을 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 표제의 형광체를 합성하였다.

이 형광체의 밝기를 같은 방법으로 만든 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 의 밝기와 비교한 결과, 365 nm에서 147 %, 400 nm에서 159 %, 450 nm에서 187 %의 밝기를 보였다. 그러나 280 nm 보다 짧은 파장에 대해서는 더 낮은 밝기를 보였다.

본 실시예의 형광체 및 $Ba_{0.99} Sr_{0.99} Eu_{0.02} SiO_4$ 형광체의 발광 분광분포도는 같은 모양을 가지지만 여기 분광분포도는 서로 다른 모양이다. 구체적으로, 도 4에는 최대 발광 세기를 보이는 515 nm에 대한 두 형광체의 여기 분광분포도가 비교되어 있다.

발명의 주제

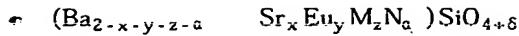
본 발명에 따라, 기존의 $(Ba_{2-x} Sr_x)SiO_4 : Eu^{2+}$ 형광체의 알칼리 토금속 자리의 일부를 회토류 원소인 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc 등과 3족 원소인 Al, Ga, In 등으로 치환해 주고 또 알칼리 금속 이온인 Li, Na, K 등으로 치환하여 형광체를 제조함으로써, 수은등에서 나오는 365 nm의 자외선과 자외선 발광 다이오드에서 나오는 370 nm 근처의 자외선에 대해 기존의 $(Ba_{2-x} Sr_x)SiO_4 : Eu^{2+}$ 형광체보다 80 % 이상 높아진 발광 효율을 얻을 수 있다.

(57) 청구항 범위

청구항 1.

유로퓸을 활성제로 하는 하기 화학식 1의 형광체.

< 화학식 1



상기 식 중,

x 는 $0 \leq x < 2$ 이고, y 는 $0.001 \leq y \leq 0.05$ 이고, z 는 $0.001 \leq z \leq 0.1$ 이고, a 는 $0 \leq a \leq 0.1$ 이고, $x+y+z+a$ 는 $0 \leq x+y+z+a \leq 2$ 이고, δ 는 $-0.05 \leq \delta \leq 0.05$ 이고, M 은 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga, In이며, N 은 Li, Na, K이다.

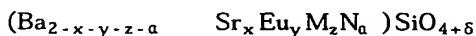
청구항 2.

출발물질을 하기 화학식 1의 조성에 따라 정량적으로 청량하여 갈아준 후, 알루미나 도가니에 넣고 가열하는 제1 열처리 단계;

상기 제1 열처리가 끝난 시료를 전기로 안에서 자연 냉각시킨 후 다시 갈아주고 이를 보트에 담아 수소 기체나 수소와 질소 혼합 기체를 흘리는 관 전기로 안에서 가열하는 제2 열처리 단계; 및

상기 제2 열처리가 끝난 시료를 수소 기체나 수소와 질소 혼합 기체를 흘리는 관 전기로 안에서 자연 냉각시키는 단계를 포함하는, 하기 화학식 1의 형광체의 제조 방법.

< 화학식 1



상기 식 중,

x 는 $0 \leq x < 2$ 이고, y 는 $0.001 \leq y \leq 0.05$ 이고, z 는 $0.001 \leq z \leq 0.1$ 이고, a 는 $0 \leq a \leq 0.1$ 이고, $x+y+z+a$ 는 $0 \leq x+y+z+a \leq 2$ 이고, δ 는 $-0.05 \leq \delta \leq 0.05$ 이고, M 은 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga, In이며, N 은 Li, Na, K이다.

청구항 3.

제2항에 있어서, 합성 원료인 Si 화합물은 순도가 99% 이상인 SiO_2 이고, Ba, Sr, Eu, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc, Al, Ga, In 등은 순도 99.9 % 이상의 질산염, 탄산염 또는 산화물 형태이며, Li, Na, K 등은 순도 99.9 % 이상의 탄산염 형태인 방법.

청구항 4.

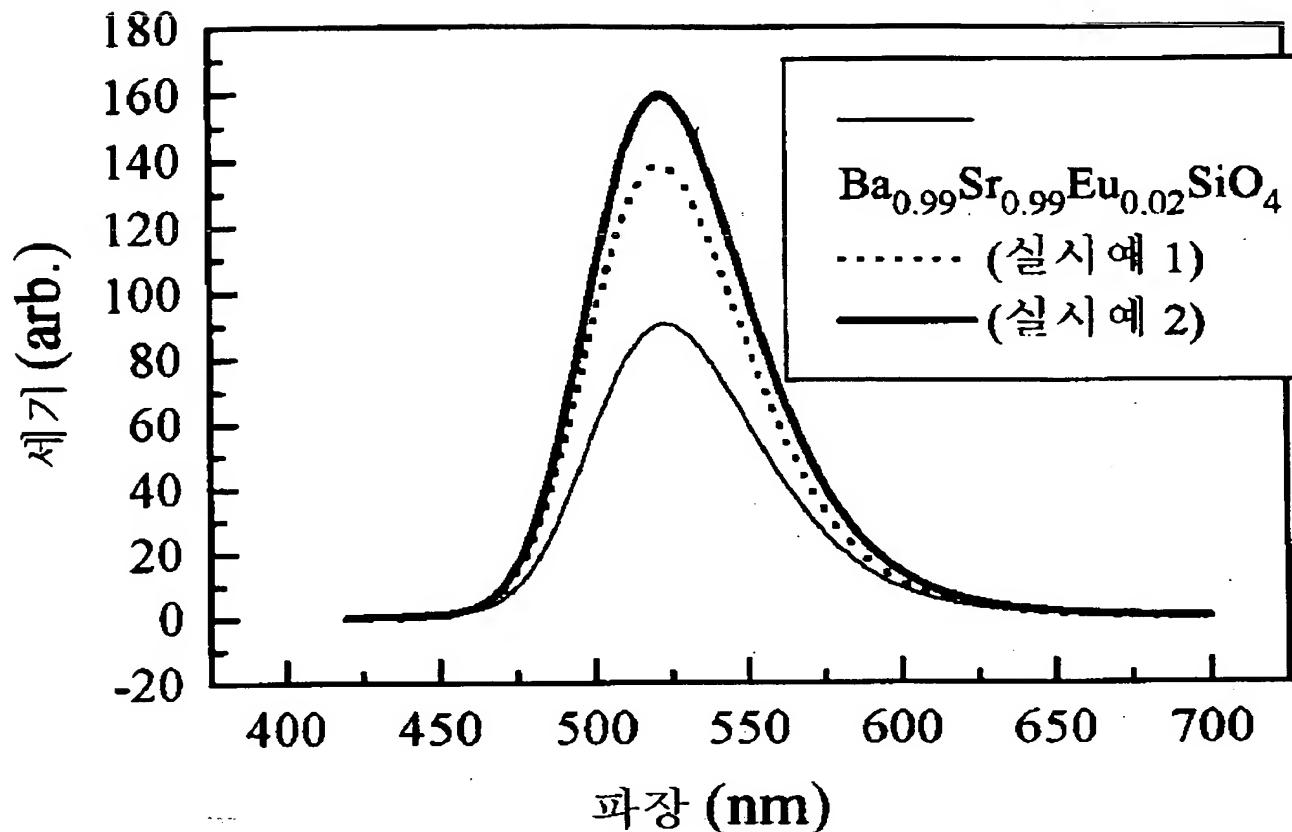
제2항에 있어서, 제1 열처리를 $700\text{ }^\circ\text{C} \sim 1000\text{ }^\circ\text{C}$ 에서 2시간 ~ 4시간 동안 수행하는 방법.

청구항 5.

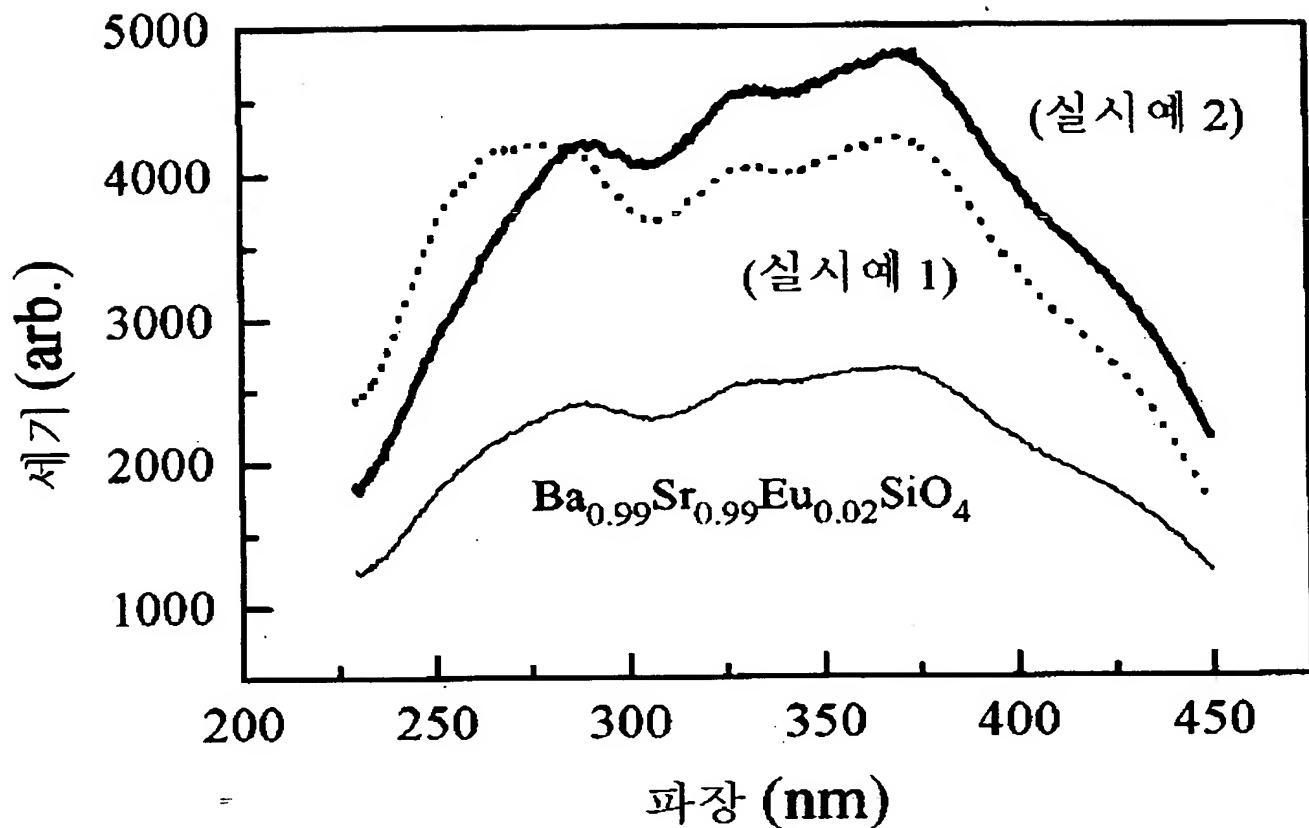
제4항에 있어서, 제2 열처리를 $1000\text{ }^\circ\text{C} \sim 1300\text{ }^\circ\text{C}$ 에서 2시간 ~ 10시간 동안 수행하는 방법.

도면

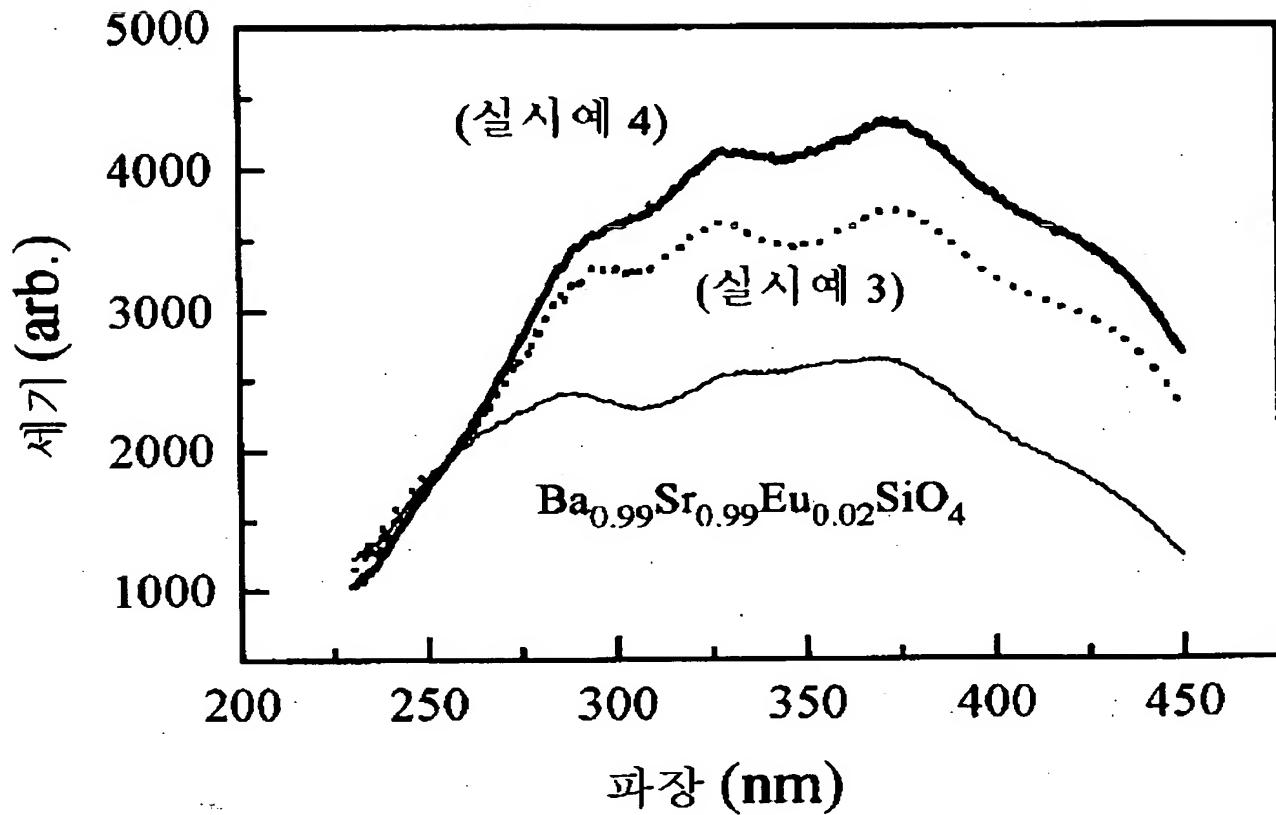
도면 1



도면 2



도면 3



도면 4

